

EUROPEAN PATENT OFFICE

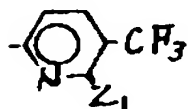
Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER : 58035174
PUBLICATION DATE : 01-03-83



I

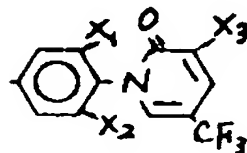
APPLICATION DATE : 26-08-81
APPLICATION NUMBER : 56133695



II

APPLICANT : ISHIHARA SANGYO KAISHA LTD;

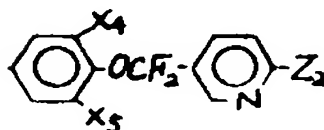
INVENTOR : IMAI OSAMU;



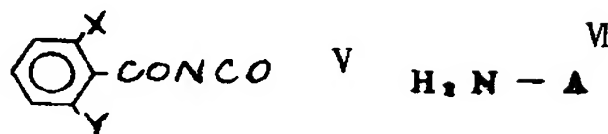
III

INT.CL. : C07D213/61 A01N 47/34 A01N 47/36
C07D213/64 C07D213/75

TITLE : BENZOYLUREA COMPOUND AND
FUNGICIDE CONTAINING IT



IV



VI

ABSTRACT : NEW MATERIAL: A benzoylurea compound shown by the formula I (A is a group shown by the formula II, formula III, formula IV, etc.; X₁-X₅ are H, or halogen; Y is halogen, nitro, or lower alkyl; Z₁ and Z₂ are halogen).

EXAMPLE: N-(2,6-Difluorobenzoyl)-N'-(2-chloro-3-trifluoromethyl-6-pyridyl)urea.

USE: Useful as an insecticide. Especially effective against noxious insects, for example, particularly Lepidoptera such as diamondback moth, *Mamestra brassicae*, etc., Diptera such as *Musca domestica* Linne, *Culex pipiens pallens* Conquillet, etc.

PROCESS: A benzoyl isocyanate compound shown by the formula V is reacted with an amine compound shown by the formula VI in the presence of a solvent such as benzene, water, etc. at 0-120°C for 0.1-24hr, to give a compound shown by the formula I.

⑨ 日本国特許庁 (JP)

⑪ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報 (A)

昭58—35174

⑤ Int. Cl.³
C 07 D 213/61
A 01 N 47/34
47/36
C 07 D 213/64
213/75

識別記号
1 0 1

庁内整理番号
7138—4C
7144—4H
7144—4H
7138—4C
7138—4C

⑬ 公開 昭和58年(1983)3月1日

発明の数 2
審査請求 未請求

(全 6 頁)

⑭ ベンゾイルウレア系化合物及びそれらを含む
する殺虫剤

⑮ 特 願 昭56—133695

⑯ 出 願 昭56(1981)8月26日

⑰ 発 明 者 藤川 敦市
守山市浮気町321番地の31

⑱ 発 明 者 芳賀 隆弘
草津市平井町84番地の7号

⑲ 発 明 者 土岐 忠昭
守山市浮気町321番地の31

⑳ 発 明 者 長谷 邦昭

⑳ 発 明 者 草津市矢倉町一丁目3番56の21
小柳 徹
京都市伏見区向島二ノ丸町151
番地30
㉑ 発 明 者 林 弘 仁
守山市浮気町321番地の31
㉒ 発 明 者 岡田 宏
守山市岡町33番地の6
㉓ 出 願 人 石原産業株式会社
大阪市西区江戸堀1丁目3番22
号

最終頁に続く

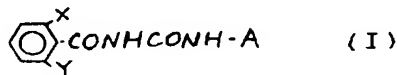
明 細 書

1. 発明の名称

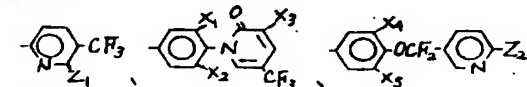
ベンゾイルウレア系化合物及びそれらを含む
する殺虫剤

2. 特許請求の範囲

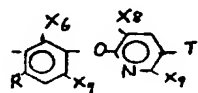
(1) 一般式



(式中、Aは式



又は



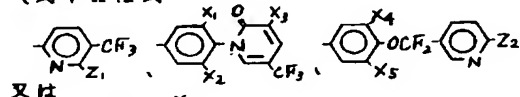
で表わされる基であり、X、X₁、X₂、X₃、X₄、
X₅、X₆、X₇、X₈及びX₉は水素原子又はハロ
ゲン原子であり、Yはハロゲン原子、ニトロ基
又は低級アルキル基であり、Z₁及びZ₂はハ
ロゲン原子であり、Rは水素原子又は低級アルコ

キシ基であり、Tはハロゲン原子又はトリフル
オロメチル基である)で表わされるベンゾイル
ウレア系化合物。

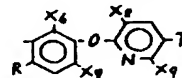
(2) 一般式



(式中Aは式



又は

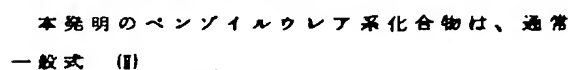
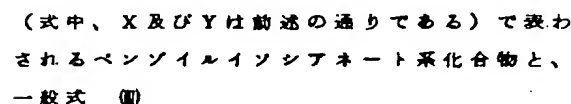


で表わされる基であり、X、X₁、X₂、X₃、X₄、
X₅、X₆、X₇、X₈及びX₉は水素原子又はハロ
ゲン原子であり、Yはハロゲン原子、ニトロ基
又は低級アルキル基であり、Z₁及びZ₂はハロ
ゲン原子であり、Rは水素原子又は低級アルコ
キシ基であり、Tはハロゲン原子又はトリフル
オロメチル基である)で表わされるベンゾイルウ
レア系化合物の少くとも一種を有効成分として
含有することを特徴とする殺虫剤。

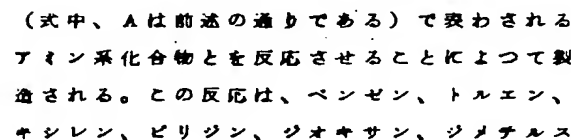
特開昭58- 35174 (Z)

ある。

前記一般式(II)のX、X₁～X₆、Y、Z₁、Z₂及びTで表わされるヘログゲン原子としては、弗素、塩素、臭素、沃素が挙げられ、Y及びRで表わされる低級アルキル基及び低級アルコキシ基のアルキル部分としてはメチル、エチル、n-ブロピル、イソブロピル、n-ブチル、tert-ブチルなどが挙げられる。


$$\text{C}_6\text{H}_3\text{X}_2\text{CONCO} \quad (\text{II})$$


H, N - A (II)



ルホキシド、水などの溶媒の存在下に行なわれ、
反応温度は 0 ~ 120 °C、反応時間は 0.1 ~ 2
4 時間である。

2 - クロロ - 8 - トリフルオロメチル -
6 - ビリジル) ウレア m.p. 219~221°C

例 6 N - (2 - メチルベンゾイル) - N' - (2 - クロロ - 3 - トリフルオロメチル - 6 - ビリジル) クレア m.p. 211~213°C

例 7 N - (2 - フルオロベンゾイル) - N' -
(2 - クロロ - 3 - トリフルオロメチル
- 6 - ビリジル) ウレア mp 218 ~ 217°C

例 8 N - (2 , 6 - ジフルオロベンゾイル)
 - N' - (3 , 5 - ジクロロ - 4 - (5 -
 トリフルオロメチル - 2 - クロロ - 2 -
 ビリドン - 1 - イル) フェニル) ヴレア
 m.p. 176~180°C

例 9 N - (2, 6 - ジフルオロベンゾイル) - N' - [4 - α - (6 - クロロ - 3 - ピリジル) - α, α - ジフルオロメトキシフェニル] クレア mp. 205~215°C

№ 10 N - (2 - クロロベンゾイル) - N' -
 [3 - (3, 5 - ジクロロ - 2 - ピリジ
 ルオキシ) フェニル] クレア

特開昭58- 35174 (3)

m.p. 151~155℃

化合物 11 N - (2 - クロロベンゾイル) - N' -
[3 - (5 - トリフルオロメチル - 6 -
クロロ - 2 - ビリジジオキシ) フェニル
] ウレア

m.p. 166~168℃

化合物 12 N - (2, 6 - ジフルオロベンゾイル)
- N' - [3 - (5 - トリフルオロメチル
- 2 - ビリジジオキシ) - 4 - クロロフ
エニル] ウレア

m.p. 188~192℃

化合物 13 N - (2, 6 - ジフルオロベンゾイル)
- N' - [3 - (3 - クロロ - 5 - トリフ
ルオロメチル - 2 - ビリジジオキシ) -
6 - メトキシフェニル] ウレア

m.p. 203~220℃

化合物 14 N - (2, 6 - ジフルオロベンゾイル)
- N' - [3 - (3 - クロロ - 5 - トリフ
ルオロメチル - 2 - ビリジジオキシ) -
2, 4 - ジクロロフェニル] ウレア

m.p. 192~198℃

化合物 15 N - (2 - クロロベンゾイル) - N' -

[3 - (3 - クロロ - 5 - トリフルオロ
メチル - 2 - ビリジジオキシ) - 2, 4 -
ジクロロフェニル] ウレア

m.p. 201~203℃

化合物 16 N - (2 - メチルベンゾイル) - N' - [3 - (3 - クロロ - 5 - トリフルオロメ
チル - 2 - ビリジジオキシ) - 2, 4 -
ジクロロフェニル] ウレア

m.p. 219~221℃

次に本発明化合物の具体的合成例を下記する。

合成例 1. N - (2, 6 - ジフルオロベンゾイ
ル) - N' - (2 - クロロ - 3 - トリ
フルオロメチル - 6 - ビリジジ) ウ
レア (化合物 1) の合成

(1) 2 - アミノ - 5 - トリフルオロメチル -
6 - クロロビリジンの合成

尿素 5.0 g と 2, 6 - ジクロロ - 3 - ト
リフルオロメチルビリジン 4.2 g とをジメ
チルスルホキシド 30 ml に溶解させ、100
℃に加温し、更に水酸化カリウム 2.5 g を

徐々に加えた。その後、130℃に昇温し
て攪拌下に2時間反応させた。反応終了後、
反応生成物を水中に投入し、塩化メチレン
で抽出した。抽出層を水洗、乾燥した後、
塩化メチレンを留去して結晶を得、メタノ
ールで再結晶して融点106~109℃の
目的物1.6gを得た。

(2) N - (2, 6 - ジフルオロベンゾイル)
- N' - (2 - クロロ - 3 - トリフルオロメ
チル - 6 - ビリジジ) ウレアの合成

2 - アミノ - 5 - トリフルオロメチル -
6 - クロロビリジン1gをジオキササン20
mlに溶解させ、そこへ10mlのジオキササン
に溶解させた2, 6 - ジフルオロベンゾイ
ルイソシアネート1.5gの溶液を20℃で
徐々に滴下して、攪拌下に5時間反応させ
た。反応終了後、反応生成物を水中に投入
して結晶を析出させ、メタノールで再結晶
して融点236~239℃の目的物1.4g
を得た。

合成例 2. N - (2, 6 - ジフルオロベンゾイ
ル) - N' - (3, 5 - ジクロロ - 4 -
(5 - トリフルオロメチル - 3 - クロ
ロ - 2 - ビリドン - 1 - イル) フェニ
ル) ウレア (化合物 8) の合成

(1) 3, 5 - ジクロロ - 4 - (5 - トリフル
オロメチル - 3 - クロロ - 2 - ビリドン -
1 - イル) ニトロベンゼンの合成

2 - ヒドロキシ - 3 - クロロ - 5 - トリ
フルオロメチルビリジン0.58g、3, 4,
5 - トリクロロニトロベンゼン0.6g及び
炭酸カリウム0.73gをN, N - ジメチル
ホルムアミド10ml中に加え、120℃で
2時間攪拌下に反応させた。反応終了後、
反応生成物を水中に投入し、析出した結晶
を分別乾燥して目的物0.6gを得た。

(2) 3, 5 - ジクロロ - 4 - (5 - トリフル
オロメチル - 3 - クロロ - 2 - ビリドン -
1 - イル) アニリンの合成

前記(1)で得られた置換ニトロベンゼン0.5

g をエタノール 10 ml 中に加え、還流下に塩化銅 1 端 1.16 g を含む塩酸溶液 1 ml を滴下し、還流温度で 30 分間反応させた。反応生成物を放冷後、濃水酸化カリウム水溶液で強アルカリ性とし、水中に投入して塩化メチレンで抽出した。抽出層を水洗、乾燥した後、塩化メチレンを留去して油状の目的物 0.4 g を得た。このものを PMR (coco₂) により値を測定したところ、それぞれ 3.788 (s, 2H)、6.630 (s, 2H)、7.993 (d, 1H)、8.222 (d, 1H) の測定値を得た。

- (3) N - (2, 6 - ジフルオロベンゾイル) N' - (3, 5 - ジクロロ - 4 - (5 - トリフルオロメチル - 3 - クロロ - 2 - ピリドン - 1 - イル) フェニル) ウレアの合成

前記(2)で得られた置換アニリン 0.4 g 及び 2, 6 - ジフルオロベンゾイルイソシアネート 0.6 g をジオキササン 5 ml 中に加え、室温で 1 昼夜攪拌しながら反応させた。反

エニル) ウレア (化合物 11) の合成

3 - (6 - クロロ - 5 - トリフルオロメチル - 2 - ピリジルオキシ) アニリン 1.6 g をジオキササン 20 ml 中に加え、20℃に保ちながら、2 - クロロベンゾイルイソシアネート 1.0 g を含むジオキササン溶液 5 ml を 5 分間にわたって滴下し、20℃で 5 時間攪拌下に反応させた。反応終了後、反応生成物を水中に投入し、得られた沈殿物をメタノールで洗浄して、融点 166 ~ 168℃の目的物 1.9 g を得た。

本発明化合物は、後記試験例にみる通り、殺虫剤、特に殺昆虫剤の有効成分として優れた活性を示す。

中でも例えば、コナガ、ヨトウムシ、ハスモンヨトウなどのような鞘翅目、コロラドハムシ、ニジュウヤホシテントウなどのような鞘翅目、イエバエ、アカイエカ、チカイエカなどのような双翅目等に対する害虫に対して効果的である。

特開昭 58 - 35174 (4)

反応生成物を水中に投入し、析出した結晶を分別、乾燥して融点 176 ~ 180℃の目的物 0.8 g を得た。

- 合成例 3. N - (2, 6 - ジフルオロベンゾイル) - N' - (4 - α - (6 - クロロ - 3 - ピリジル) - α, α - ジフルオロメトキシフェニル) ウレア (化合物 9) の合成

4 - α - (6 - クロロ - 3 - ピリジル) - α, α - ジフルオロメトキシフェニル 200 mg、ジオキササン 10 ml 及び 2, 6 - ジフルオロベンゾイルイソシアネート 130 mg をフラスコに投入し、50℃で 30 分間攪拌下に反応させた。反応終了後、生成物を水中に投入し、析出した結晶を水洗、乾燥して、融点 205 ~ 215℃の目的物 150 mg を得た。

- 合成例 4. N - (2 - クロロベンゾイル) - N' - (3 - (5 - トリフルオロメチル - 6 - クロロ - 2 - ピリジルオキシ) フ

本発明化合物を殺虫剤の有効成分として使用するに際しては、従来の農薬の製剤の場合と同様に農薬補助剤と共に乳剤、粉剤、水和剤、液剤などの種々の形態に製剤することができ、これら製剤品をそのまま使用したり、或いは希釈剤で所定濃度に希釈してから使用したりすることができる。

ここで言う農薬補助剤としては、タルク、カオリン、ベントナイト、珪藻土、ホワイトカーボン、クレー、澱粉などの固型担体、水、キシレン、トルエン、ジメチルスルホキシド、ジメチルホルムアミド、アセトニトリル、アルコールなどの液体希釈剤、乳化剤、分散剤、展着剤などをあげることができる。また、必要に応じて他の農薬、例えば殺虫剤、殺ダニ剤、殺菌剤、植物生長調整剤などと混用、併用することができ、この場合に一層すぐれた効果を示す場合もある。

例えば、殺虫剤としては有機リン酸エステル系化合物、カーバメート系化合物、ジチオ(又

はチオール) カーバメート系化合物、有機塩素系化合物、ジニトロ系化合物、有機硫黄又は金属系化合物、抗生物質、置換ジフェニルエーテル系化合物、尿素系化合物、トリアジン系化合物、ベンゾイルウレア系化合物、ビレスロイド系化合物が挙げられ、更に詳しくは、N - (2, 6 - ジフルオロベンゾイル) - N' - (p - クロロフェニル) 尿素のようなベンゾイルウレア系化合物、 α - シアノ - 3 - フェノキシベンジル - 2 - (4 - クロロフェニル) イソバレレートのようなビレスロイド系化合物が挙げられる。

本発明の殺虫剤は、種々の有害虫、特に有害昆虫の防除に有効であり、施用は一般に1 ~ 10000ppm、望ましくは20 ~ 2000ppmの有効成分濃度でよくなる。また、家畜に対して、前記有効成分を飼料に混合して与え、その排泄物での有害虫、特に有害昆虫の発生、生育を防除することもできる。なお、水性有害虫の場合は、上記の濃度範囲の薬液を発生場所に散布して防除できることから、水中での濃度

範囲は上記以下でも有効である。

試験例 1.

有効成分化合物の製剤品を水に分散させ、800ppmの濃度に調整した薬液にキャベツの葉片を約10秒間浸漬し、取出して風乾した。ベトリ皿(直径9cm)に湿った和紙をしき、その上に葉片を置いた。そこへ2 ~ 3令のコナガの幼虫を放ち、ふたをして28℃の照明付き恒温器内に放置した。放虫後8日目に生死を判定し、次記の計算式により死亡率を求めて第1表の結果を得た。

$$\text{死亡率} = \frac{\text{死虫数}}{\text{放虫数}} \times 100(\%)$$

第1表

有効成分化合物	死虫率(%)	有効成分化合物	死虫率(%)
1	100	9	100
2	100	10	100
3	100	11	100
4	100	12	100
5	100	13	100
6	100	14	100
7	100	15	100
8	100	16	100

試験例 2

2 ~ 3令のコナガを2 ~ 3令のハスモンヨトウにかえること以外は、前記試験例1の場合と同様にして試験を行ない、第2表の結果を得た。

第2表

有効成分化合物	死虫率(%)	有効成分化合物	死虫率(%)
1	100	9	100
2	100	10	100
3	100	11	100
4	100	12	100
5	100	13	100
6	100	14	100
7	100	15	100
8	100	16	100

試験例 3.

直径9cmの深底シャーレに500ppbの濃度に調整した薬液を約250ml入れ、そこへ8令のチカイエカの幼虫を放ち、ふたをして28℃の照明付き恒温器内に放置した。放虫後10日目に幼虫の生死を調査して、試験例1の場合

と同様にして死虫率を求め、第3表の結果を得た。

第3表

有効成分化合物	死虫率(%)	有効成分化合物	死虫率(%)
1	100	9	100
2	100	10	100
3	100	11	100
4	100	12	100
5	100	13	—
6	90	14	—
7	85	15	—
8	90	16	—

製剤例 1.

- (A) N - (2, 6 - ジフルオロベンゾイル) - N' - (3, 5 - ジクロロ - 4 - (5 - トリフルオロメチル - 3 - クロロ - 2 - ピリドン - 1 - イル) フェニル) ウレア 20重量部
 (B) N, N - ジメチルホルムアミド 70重量部
 (C) ポリオキシエチレンアルキルフェニルエー

特開昭58- 35174 (6)

ナール 10重量部

以上のものを均一に混合、溶解して乳剤とした。

製剤例2.

(イ) N - (2 - クロロベンゾイル) - N' - (3 - (5 - トリフルオロメチル - 6 - クロロ - 2 - ビリジルオキシ) フェニル) ウレア

5重量部

(ロ) タルタ 95重量部

以上のものを均一に粉砕、混合して粉剤とした。

製剤例3.

(イ) N - (2 - クロロベンゾイル) - N' - (3 - (5 - トリフルオロメチル - 6 - クロロ - 2 - ビリジルオキシ) フェニル) ウレア

25重量部

(ロ) ジークライト 70重量部

(ハ) リタニンスルホン酸ソーダ 5重量部

以上のものを均一に粉砕、混合して水和剤とした。

第1頁の続き

②発明者 今井修

草津市集町502番地